



中国科大揭示铱基钙钛矿在酸性水氧化反应中的活性层结构演化

来源：科研部 发布时间：2021-11-01 浏览次数：163

近日，中国科学技术大学国家同步辐射实验室闫文盛教授课题组和美国威斯康辛大学麦迪逊分校金松教授课题组合作，通过液相煅烧和强酸预处理成功合成出1 nm IrO_x 颗粒组装的活性层均匀锚定在9R- BaIrO_3 表面，结合同步辐射吸收谱、光电子能谱与扫描透射电镜联用，成功系统性的揭示了研发的高活性9R- BaIrO_3 酸性水氧化电催化剂的表面活性层结构及其演变过程。相关研究成果以

“Identification of the active-layer structures for acidic oxygen evolution from 9R- BaIrO_3 electrocatalyst with enhanced iridium mass activity”为题，于10月25日发表在《美国化学会志》杂志 (J. Am. Chem. Soc.**2021**, DOI: 10.1021/jacs.1c04087)。

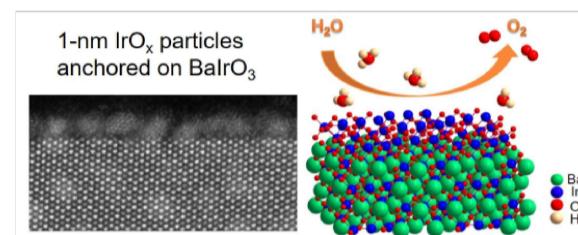


图1. 1 nm IrO_x 颗粒均匀锚定在9R- BaIrO_3 表面的HADDF-STEM图（左）及其水氧化示意图（右）

电解水在可再生能源技术中起到了至关重要的作用，但是其中涉及到的析氧反应的动力学过程缓慢，限制了电解水的效率。与传统的碱性电解水技术相比，质子交换膜(酸性)电解水技术展现出更好的应用前景。目前，综合催化剂活性和稳定性两个方面考虑，铱基钙钛矿氧化物表现出了较好的酸性水氧化性能。但是由于纳米尺度表征技术的限制，铱基钙钛矿氧化物在电化学反应过程中真实的活性层结构及其演化过程一直缺乏全面系统的认知，同时贵金属铱质量活性较低和电化学稳定性时长较短，这些挑战极大地限制了铱基钙钛矿氧化物在质子交换膜电解水技术中的应用。

针对上述科学难题，闫文盛教授和金松教授课题组合作，运用同步辐射吸收谱技术，结合HADDF-STEM成像和XPS分析，系统地阐明了 IrO_x /9R- BaIrO_3 的表面活性层在水氧化过程中的演变情况： IrO_x 纳米颗粒/9R- BaIrO_3 演变成 $\text{Ir}^{4+}\text{O}_x\text{Hy}$ 非晶/ IrO_6 八面体，然后进一步演变为 Ir^{5+}O_x 非晶/ IrO_6 八面体。电子结构表征证实，含高价态Ir的 Ir^{5+}O_x 和增强的金属电导率使得 IrO_x /9R- BaIrO_3 表现出比6H- SrIrO_3 和 IrO_2 更高的催化活性。这项研究不仅对铱基钙钛矿表面活性层结构在反应过程中的演变过程提出了深入的理解，同时也提出了开发高效酸性水氧化电催化剂的新方法，将为未来发展高质量活性且稳定的电催化剂提供科学依据。

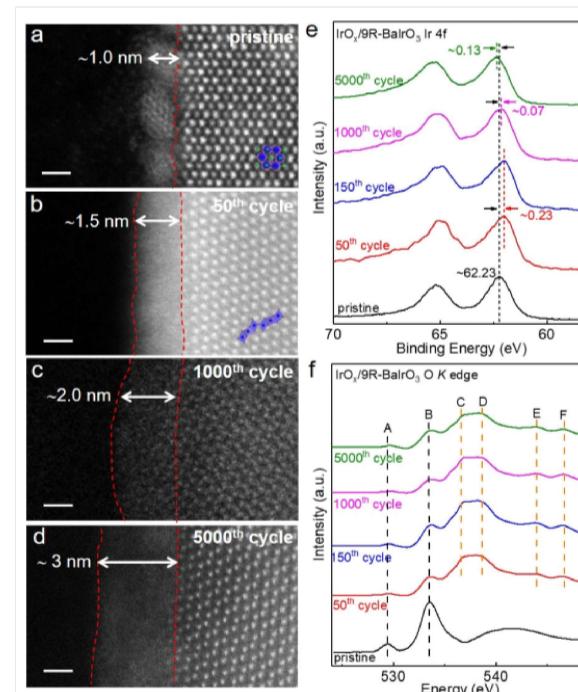


图2. IrO_x /9R- BaIrO_3 的表面活性结构在电化学水氧化过程中的演化行为。 (a-d) HADDF-STEM, 标尺为1 nm, (e) Ir 4f XPS, (f) O K edge.

论文共同第一作者是中国科学技术大学李娜博士后和已毕业博士生蔡亮。该项研究工作得到了国家自然科学基金，合肥大科学中心高端用户培训基金和中国博士后科学基金等专项经费资助，也得到了合肥国家同步辐射实验室、上海和北京同步辐射装置测试机时的支持。

论文链接: <https://pubs.acs.org/doi/10.1021/jacs.1c04087>

(国家同步辐射实验室、科研部)

